

P^ATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ASAHINA, Sohta
NS Building
2-22, Tanimachi 2-chome
Chuo-ku
Osaka-shi
Osaka 540-0012
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 14 mars 2002 (14.03.02)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference FP-6704PCT	
International application No. PCT/JP00/06631	International filing date (day/month/year) 27 septembre 2000 (27.09.00)

1. The following indications appeared on record concerning:		
<input checked="" type="checkbox"/> the applicant	<input checked="" type="checkbox"/> the inventor	<input type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative
Name and Address MIMURA, Kazuyoshi c/o Yodogawa-seisakusho, Daikin Industries, Ltd. 1-1, Nishihitotsuya Settsu-shi, Osaka 566-8585 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:		
<input type="checkbox"/> the person	<input type="checkbox"/> the name	<input checked="" type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence
Name and Address MIMURA, Kazuyoshi Green Kopo Kawaguchi 2-D 344-6, Shimomura-cho Matsusaka-shi Mie 515-0043 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:		
4. A copy of this notification has been sent to:		
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:	

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer <p style="text-align: center;">Susumu KUBO</p> Telephone No.: (41-22) 338.83.38
--	---

The first part of the paper discusses the importance of the research and the objectives of the study. It then proceeds to a literature review, followed by a description of the methodology used. The results of the study are presented in the next section, followed by a discussion of the findings and their implications. The paper concludes with a summary of the main points and a list of references.

The research was conducted in a laboratory setting, using a series of experiments to measure the effects of the treatment. The subjects were recruited from a local university and were given a detailed explanation of the procedures before participating. The data collected was analyzed using statistical software, and the results were compared to those of the control group.

The findings of the study suggest that the treatment has a significant effect on the outcome variable. This is supported by the statistical analysis, which shows a clear difference between the treatment and control groups. The implications of these findings are discussed in the next section, where it is argued that the treatment may have broader applications in the field.

In conclusion, the study has shown that the treatment is effective in improving the outcome variable. This is a significant finding, as it suggests that the treatment may be a useful tool for addressing the problem. Further research is needed to confirm these findings and to explore the underlying mechanisms of the treatment's effect.

PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 05 July 2001 (05.07.01)	Applicant's or agent's file reference FP-6704PCT
International application No. PCT/JP00/06631	Priority date (day/month/year) 30 September 1999 (30.09.99)
International filing date (day/month/year) 27 September 2000 (27.09.00)	
Applicant IRIE, Sadashige et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

27 March 2001 (27.03.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer H. Zhou
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

PCT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ASAHINA, Sohta
NS Building
2-22, Tanimachi 2-chome
Chuo-ku
Osaka-shi
Osaka 540-0012
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 23 November 2000 (23.11.00)	
Applicant's or agent's file reference FP-6704PCT	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/06631	International filing date (day/month/year) 27 September 2000 (27.09.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 30 September 1999 (30.09.99)
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
30 Sept 1999 (30.09.99)	11/277995	JP	17 Nove 2000 (17.11.00)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Magda BOUACHA

Telephone No. (41-22) 338.83.38



6T

21 DEC 2001
PCT

特 協 力 条 約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 FP-6704PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/06631	国際出願日 (日.月.年) 27.09.00	優先日 (日.月.年) 30.09.99
国際特許分類(IPC) IntCl ⁷ C08L27/12, C08K5/00, C08L21/00		
出願人(氏名又は名称) ダイキン工業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
この附属書類は、全部で _____ ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 27.03.01	国際予備審査報告を作成した日 05.12.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員)	4 J 9843
	関 政 立 印 電話番号 03-3581-1101 内線 3495	



I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
明細書 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
明細書 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項、 出願時に提出されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図、 出願時に提出されたもの
図面 第 _____ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
図面 第 _____ ページ/図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)



V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性（N）

請求の範囲 1-10 有
請求の範囲 無

進歩性（IS）

請求の範囲 1-10 有
請求の範囲 無

産業上の利用可能性（IA）

請求の範囲 1-10 有
請求の範囲 無

2. 文献及び説明（PCT規則70.7）

請求の範囲1-5のフッ素樹脂微粒子を含んだ透明なエラストマー組成物、請求の範囲6-7の上記組成物の製造方法、及び請求の範囲8-10の上記組成物から得られる成形品は、国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、また、いずれの文献の記載からも当業者が容易に導くことができたものではない。



Translation
10/089523

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

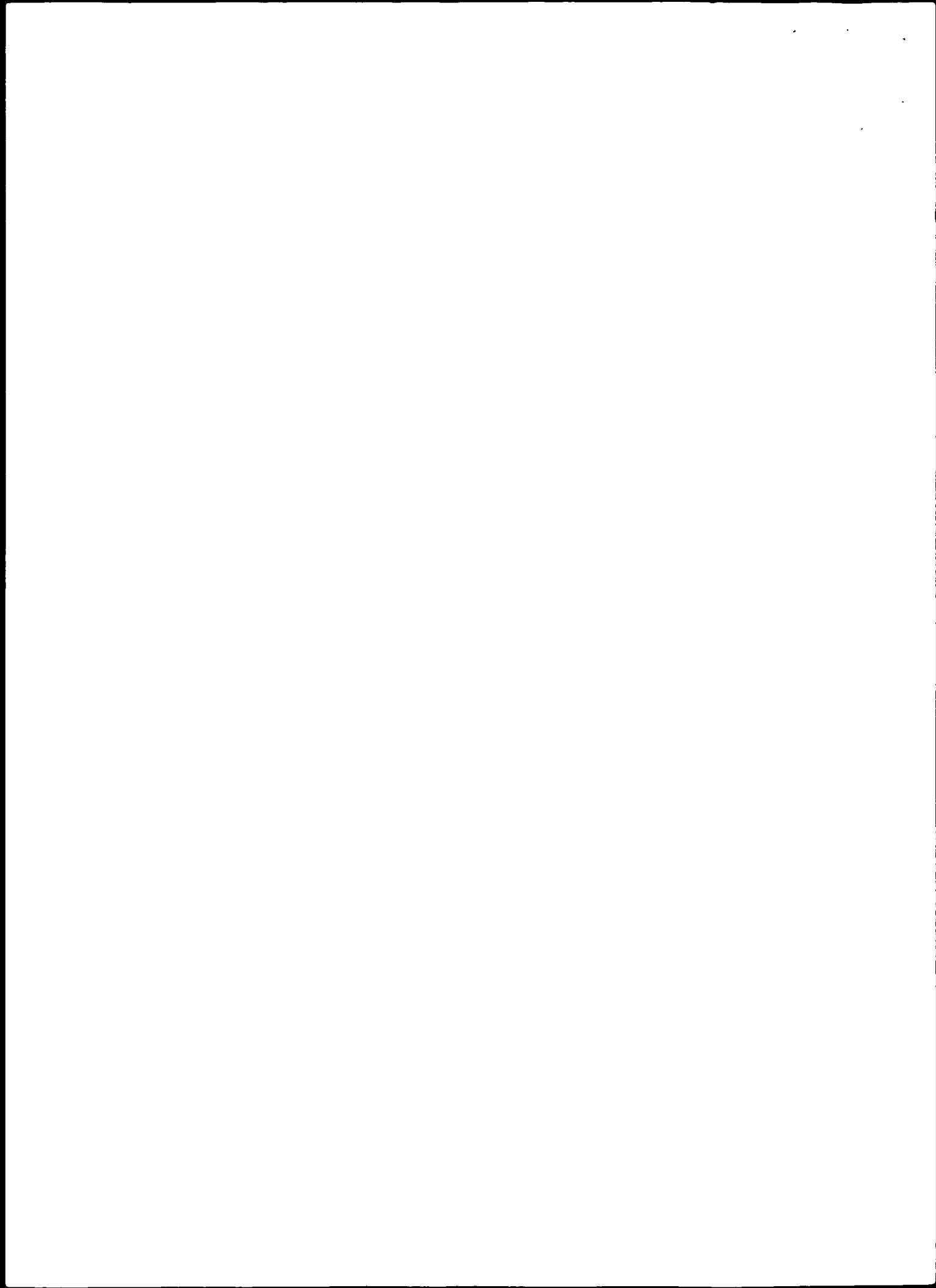
INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference FP-6704PCT	FOR FURTHER ACTION	See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA 416)
International application No. PCT/JP00/06631	International filing date (day month year) 27 September 2000 (27.09.00)	Priority date (day month year) 30 September 1999 (30.09.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08L 27/12, C08K 5/00, C08L 21/00		
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.	
2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.	
<input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).	
These annexes consist of a total of _____ sheets.	
3. This report contains indications relating to the following items:	
I <input checked="" type="checkbox"/>	Basis of the report
II <input type="checkbox"/>	Priority
III <input type="checkbox"/>	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
IV <input type="checkbox"/>	Lack of unity of invention
V <input checked="" type="checkbox"/>	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability: citations and explanations supporting such statement
VI <input type="checkbox"/>	Certain documents cited
VII <input type="checkbox"/>	Certain defects in the international application
VIII <input type="checkbox"/>	Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 27 March 2001 (27.03.01)	Date of completion of this report 05 December 2001 (05.12.2001)
Name and mailing address of the IPEA JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/06631

I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.
These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and "0.1").

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No

PCT/JP 00/06631

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability: citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

None of the documents cited in the international search report discloses the transparent elastomer compositions including fine particles of a fluorine resin described in Claims 1-5, the process for producing aforementioned compositions disclosed in Claims 6-7 or the moulded products obtained from aforementioned compositions disclosed in Claims 8-10, and these could not be easily deduced by a person skilled in the art from disclosures in any documents.

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 4 月 5 日 (05.04.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/23470 A1

(51) 国際特許分類⁷: C08L 27/12, C08K 5/00, C08L 21/00

〒530-8323 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル Osaka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/06631

(22) 国際出願日: 2000 年 9 月 27 日 (27.09.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願平11/277995 1999 年 9 月 30 日 (30.09.1999) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ダイキン工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP];

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 入江貞成 (IRIE, Sadashige) [JP/JP]. 三村和義 (MIMURA, Kazuyoshi) [JP/JP]. 西林浩文 (NISIBAYASHI, Hirofumi) [JP/JP]. 田中宏幸 (TANAKA, Hiroyuki) [JP/JP]. 野口 剛 (NOGUCHI, Tsuyoshi) [JP/JP]. 岸根 充 (KISHINE, Mitsuru) [JP/JP]; 〒566-8585 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社 淀川製作所内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 朝日奈宗太, 外 (ASAHINA, Sohta et al.); 〒540-0012 大阪府大阪市中央区谷町二丁目2番22号 NSビル Osaka (JP).

[続葉有]

(54) Title: TRANSPARENT ELASTOMER COMPOSITION

(54) 発明の名称: 透明なエラストマー組成物



(57) Abstract: A transparent elastomer composition which is obtained by co-coagulating an emulsion of fine fluororesin particles having an average particle diameter of 20 to 150 nm and an emulsion of elastomer particles and in which the fine fluororesin particles are evenly and finely dispersed in the elastomer. The composition gives an elastomer molding in which the fine fluororesin particles are evenly and finely dispersed in the elastomer and which is excellent in mechanical strength, wearing resistance, transparency, etc.

(57) 要約:

平均粒径が 20 ~ 150 nm のフッ素樹脂微粒子のエマルションとエラストマー粒子のエマルションを共凝析することにより得られ、フッ素樹脂微粒子がエラストマー中に均一に微分散した透明なエラストマー組成物であって、フッ素樹脂微粒子がエラストマー中に均一に微分散しており、機械的強度、耐摩耗性、透明性などに優れるエラストマー成形品を提供する。



WO 01/23470 A1



(81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, SG, US.

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

明 細 書

透明なエラストマー組成物

技術分野

本発明は、エラストマーとフッ素樹脂微粒子との透明な組成物、たとえば含フッ素エラストマーをマトリックスとし、これにフッ素樹脂微粒子が微細に分散している透明なエラストマー組成物に関する。このエラストマー組成物は機械的強度が向上した成形物を提供でき、各種の成形品のベースエラストマーとして有用である。また、組成物に添加する添加剤を選択することにより、さらに機械的強度や透明性に優れたエラストマー成形物を提供することができる。

背景技術

含フッ素エラストマーにフッ素樹脂を添加することは従来より知られており、クリーンな充填剤として機械的強度の向上を図る、フッ素樹脂のもつ低摩擦特性を利用するなどを目的としている。また、混合方法としても通常のゴム練りロールでのドライブレンド法のほか、溶剤を用いて分散性を上げようとする方法などが提案されている。

たとえば特開昭 5 5 - 1 5 1 0 5 1 号公報には、ポリテトラフルオロエチレン（P T F E）の低分子量物を配合して耐摩耗性に優れたフッ素ゴムを得ている。また、特開昭 6 3 - 1 7 8 1 4 9 号公報にはゴムのガスバリアー性および力学的強度を向上させるために P T F E 粉末を

フッ素ゴム溶液中に添加混合する方法が記載されており、さらに特開平 2 - 2 6 1 8 5 0 号公報にはゴム 1 0 0 重量部に対し 3 0 ~ 1 5 0 重量部という多量のフッ素樹脂を有機溶剤と同時に配合して摩擦係数を下げ、機械的特性を向上させることが提案されている。

クリーン性を得るためにフッ素樹脂を配合する例として、W O 9 7 / 0 8 2 3 9 号パンフレットには、フッ素ゴム 1 0 0 重量部に平均粒径が 0 . 2 ~ 5 0 μ m のフッ素樹脂粉末を 5 ~ 5 0 重量部配合した組成物がエッチング装置用封止剤として優れたものであることが記載されており、また W O 9 5 / 0 2 6 3 4 号パンフレットには、ゴム成分 1 0 0 重量部に対しフッ素樹脂微粉末を 2 ~ 5 0 重量部配合した組成物が半導体のウェットプロセスに適したクリーンな組成物であることが記載されている。

しかしこれらの先行技術はいずれもマトリックスであるゴム（エラストマー）に添加混合したものであり、たとえ溶剤を使用して分散性を高めたとしても粒径が微細になればなるほど、均一な分散が困難となる。このことは、たとえば透明なエラストマーにフッ素樹脂微粒子を分散させたとき、均一に分散していれば透明になるはずであるが、実際のところ、今までフッ素樹脂が均一に微分散された透明なエラストマー組成物は得られていない。

フッ素樹脂微粒子が均一に分散していないと、加硫成形して得られる成形品の強度が小さく、フッ素樹脂を添加した目的が充分達成されない。

本発明は、微細なフッ素樹脂粒子が均一に透明なエラストマーに分散しており、フッ素樹脂の添加効果を最大限に発揮し得るエラストマー組成物を提供することを目

的とする。

発明の開示

すなわち本発明は、透明なエラストマーにフッ素樹脂微粒子が微細に分散している透明なエラストマー組成物に関する。

マトリックスを構成する透明なエラストマーは含フッ素エラストマーであることが好ましく、またフッ素樹脂微粒子は平均粒径20～150nmの微粒子であることが好ましい。

本発明はまた、架橋剤、要すれば架橋促進剤、充填剤を含むエラストマー組成物にも関する。

本発明のエラストマー組成物は、たとえば透明なエラストマー粒子のエマルジョンとフッ素樹脂微粒子のエマルジョンとを混合したのち共凝析することにより得ることができる。

本発明は、前記エラストマー組成物を加硫成形して得られるエラストマー成形品、さらには透明なエラストマー成形品にも関する。

本発明において透明とは、後述するヘイズ値が50%以下であることをいう。

図面の簡単な説明

図1は本発明の実施例1で得られたエラストマー組成物の透過型電子顕微鏡写真(20000倍)である。

図2は本発明における比較例3で得られたエラストマー組成物の透過型電子顕微鏡写真(20000倍)である。

発明を実施するための最良の形態

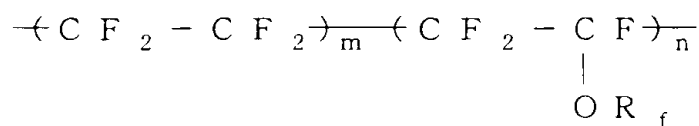
本発明は、従来困難であったフッ素樹脂微粒子の均一分散を、透明なエラストマー粒子のエマルジョンとフッ素樹脂微粒子のエマルジョンとを混合したのち共凝析するという方法により達成したものである。

フッ素樹脂微粒子が均一に微分散しているか否かは、透過型電子顕微鏡（TEM）で観察すればハッキリするし（後述の図1参照）、またマトリックスである透明なエラストマーの透明性がフッ素樹脂微粒子を混合したのちにも維持されているか否かで判断できる。すなわち、同じ粒径のフッ素樹脂微粒子を一旦凝析・乾燥したのち混合するドライブレンド法や溶剤を用いた混合法で分散させても得られるブレンド物は白濁している。これは、フッ素樹脂微粒子が二次凝集しているか、または局在化して分散しているためと考えられる（後述の図2参照）。

本発明の架橋前のエラストマー組成物はヘイズ値が50%以下、好ましくは40%以下、特に30%以下の透明性を有している。

本発明で用いるマトリックス用のエラストマーは粒子の状態でエマルジョンを形成し得る透明なエラストマーであり、かつフッ素樹脂と親和性を有するものであればよい。この点から含フッ素エラストマーが好ましい。

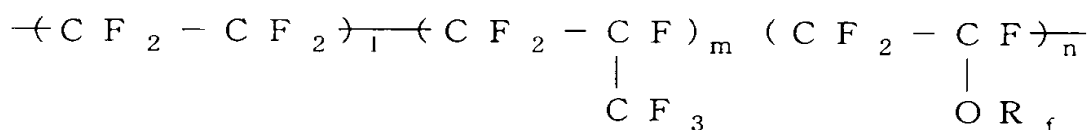
含フッ素エラストマーとしては、たとえば式（1）：



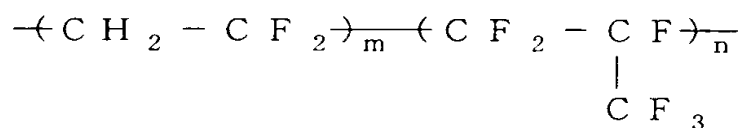
（式中、 $m/n = 95 \sim 50 / 5 \sim 50$ （モル%。以下同様）、 R_f は炭素数1～8のパーフルオロアルキル基）

で示される 2 元共重合体エラストマー（テトラフルオロエチレン（T F E）／パーフルオロ（アルキルビニルエーテル）（P A V E）系エラストマー）、

式（2）：

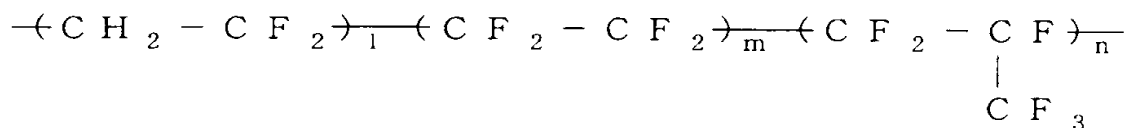


（式中、 $1 / m / n = 95 \sim 35 / 0 \sim 30 / 5 \sim 35$ 、 R_f は炭素数 1 ～ 8 のパーフルオロアルキル基）で示される 3 元共重合体エラストマー（T F E／ヘキサフルオロプロピレン（H F P）／P A V E 系エラストマー）など、式（3）：



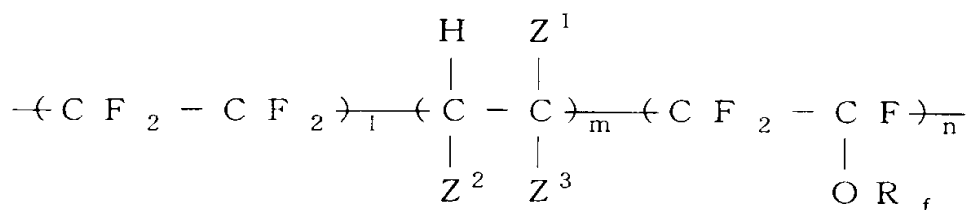
（式中、 $m / n = 85 \sim 60 / 15 \sim 40$ ）で示される 2 元共重合体エラストマー、

式（4）：

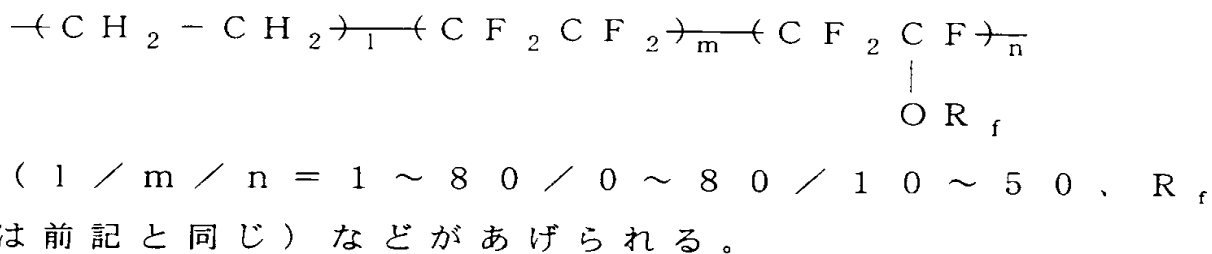
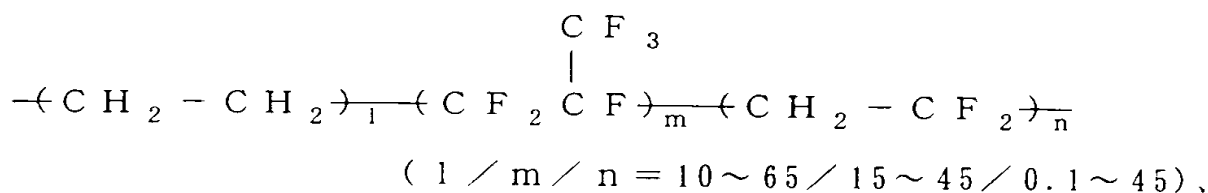
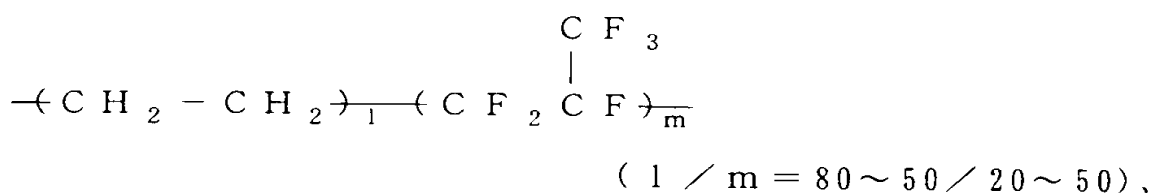
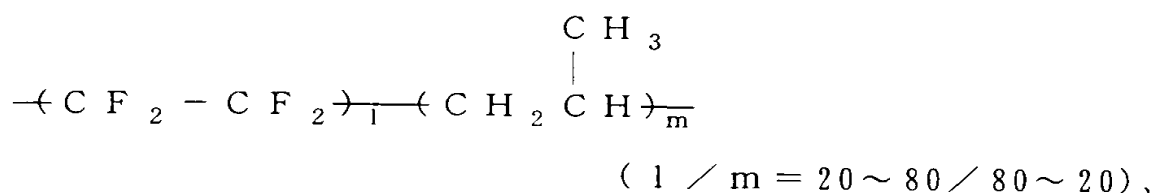


（式中、 $1 / m / n = 85 \sim 20 / 0 \sim 40 / 15 \sim 40$ ）で示される 3 元共重合体エラストマー、

式（5）：



(式中、 $l / m / n = 95 \sim 45 / 0 \sim 10 / 5 \sim 45$ 、 Z^1 、 Z^2 および Z^3 はそれぞれ独立してフッ素原子または水素原子、 R_f は炭素数1～8のパーフルオロアルキル基)で示される3元共重合体エラストマー、または



より具体的には、TFE / PAVE 共重合体エラストマー、ビニリデンフルオリド (VdF) / ヘキサフルオロプロピレン (HFP) 共重合体エラストマー、VdF / HFP / TFE 共重合体エラストマー、VdF / TFE / PAVE 共重合体エラストマーなどがあげられ、これらのエラストマーはさらに少量の架橋性反応基を含

有するモノマーが共重合されていてもよい。架橋性反応基としては、たとえばヨウ素原子、臭素原子、ニトリル基、カルボキシ基、不飽和二重結合、水酸基などがあげられる。

これらの含フッ素エラストマーは、通常の乳化重合法で製造することができ、得られる重合反応物であるエマルションはそのまま、または適宜濃度を調整して後述する共凝析に使用することができる。または、一旦乾燥したのち再乳化分散させてもよい。

含フッ素エラストマー以外のエラストマーとしては、たとえば水素添加ニトリルブタジエンゴム、アクリルゴム、シリコーンゴムなどがあげられる。

エマルション中のエラストマー粒子の平均粒径は特に制限されず、たとえば10～800nm、好ましくは20～500nmである。しかし10nmよりも小さすぎると凝析しにくくなり、800nmよりも大きすぎるとエマルションが不安定となり共凝析を行ないにくくなる。

エラストマーに微分散させるフッ素樹脂微粒子は特に制限されず、たとえば

(1) ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) ;

(2) $\text{TFE} / \text{CF}_2 = \text{CF} - \text{O} - \text{R}_f^1$ (FVE) 共重合体 (ただし、非エラストマー性を示す組成範囲。たとえば $\text{CF}_2 = \text{CF} - \text{O} - \text{R}_f^1$ が15モル%以下。 R_f^1 は1個以上のエーテル型酸素原子を有していてもよい直鎖状または分岐鎖状のフルオロもしくはパーフルオアルキル基、またはフルオロもしくはパーフルオオキシアルキル基である。)、たとえば TFE / PAVE 共重合体 (PFA) ;

(3) T F E / C F₂ = C F - R_f¹ 共重合体 (ただし、非エラストマー性を示す組成範囲、たとえば、C F₂ = C F - R_f¹ が 15 モル % 以下。R_f¹ は前記と同じ)、たとえば T F E / H F P 共重合体 (F E P) ;

(4) エチレン / T F E (30 ~ 60 / 70 ~ 40。モル %。以下同様) 共重合体 ;

(5) ポリクロロトリフルオロエチレン (P C T F E) ;

(6) エチレン / クロロトリフルオロエチレン (C T F E) (30 ~ 60 / 70 ~ 40) 共重合体 ;

(7) ポリビニリデンフルオライド (P V d F) ;

(8) ビニリデンフルオライド (V d F) / T F E (70 ~ 99 / 30 ~ 1) 共重合体 ;

(9) V d F / T F E / C T F E (50 ~ 99 / 30 ~ 0 / 20 ~ 1) 共重合体 ;

(10) V d F / T F E / H F P (60 ~ 99 / 30 ~ 0 / 10 ~ 1) 共重合体 ;

(11) エチレン / T F E / H F P (6 ~ 60 / 40 ~ 81 / 1 ~ 30) 共重合体 ;

(12) 3, 3, 3 - トリフルオロプロピレン - 1, 2 - トリフルオロメチル - 3, 3, 3 - トリフルオロプロピレン - 1 / P A V E (40 ~ 60 / 60 ~ 40) 共重合体

などの微粒子があげられる。これらのうち、成形品への低摩擦性を付与する場合、前記 (1) が好ましく、特にパーフルオロエラストマー成分の相溶性を向上させる点からは前記 (2)、(3) が好ましい。

なお、前記 (1) の P T F E には T F E の単独重合体だけでなく、溶融流動性を与えない範囲で少量の共単量

体を共重合した変性 P T F E も含む。共単量体としては、H F P、C T F E、パーフルオロビニルエーテル、トリフルオロエチレン、パーフルオロアルキルエチレンなどがあげられ、パーフルオロビニルエーテルを共単量体とする場合は 2 重量 % まで、好ましくは 0.001 ~ 1 重量 %、より好ましくは 0.01 ~ 1 重量 % の量で共重合する。

これらのフッ素樹脂は通常の乳化重合法により製造することができ、得られる重合反応物であるエマルションはそのまま、または適宜濃度を調整して後述する共凝析に使用することができる。または、一旦乾燥したのち再乳化分散させてもよい。

エマルション中のフッ素樹脂微粒子の平均粒径は、150 nm 未満、好ましくは 20 ~ 150 nm、さらに好ましくは 20 ~ 100 nm である。平均粒径が小さすぎると生産性が著しく低下し、200 nm 以上となると均一な分散物が得られなくなる。

エラストマーとフッ素樹脂との混合比率は、成形品に与えたい特性などによって適宜選定すればよいが、エラストマー 100 重量部に対し、フッ素樹脂は補強効果を得る点から 1 重量部以上、好ましくは 5 重量部以上、また得られる架橋物のゴム加工が容易な点から 150 重量部以下、好ましくは 100 重量部以下、より好ましくは 50 重量部以下とすることが望ましい。

エラストマーとフッ素樹脂との組合せは、それぞれの凝析性が近似しているか否か、重合体としての親和性があるか否かなどを考慮し、目的とする機能などに合わせて選定すればよい。

好ましい組合せとしては、たとえば

(a) T F E / P A V E 系エラストマーと T F E / P A V E 系樹脂 (P F A) ;

(b) T F E / P A V E 系エラストマーと T F E / H F P 系樹脂 (F E P) ;

(c) V d F / H F P 系エラストマーと P V d F 系樹脂 ;

(d) V d F / H F P / T F E 系エラストマーと P V d F 系樹脂 ;

(e) T F E / プロピレン系エラストマーとエチレン / T F E 系樹脂 (E T F E)

などがあげられるが、これらに限られるものではない。

本発明のエラストマー組成物は、前記のエラストマー粒子のエマルジョンとフッ素樹脂微粒子のエマルジョンを混合し共凝析することにより製造できる。共凝析は公知の凝析法にしたがって実施することができる。たとえば、エラストマー粒子のエマルジョンとフッ素樹脂微粒子のエマルジョンを混合した混合液を凝析液中に滴下する方法、またはエマルジョン混合液中に凝析液を滴下する方法などが採用できる。

混合エマルジョンの濃度は生産性などにより適宜決めればよく特に制限はないが、通常 5 ~ 50 重量 %、好ましくは 10 ~ 30 重量 % である。凝析にあたって、2 ~ 10 倍に純水で希釈することも可能である。

具体的な共凝析法としては、たとえば塩析法、酸凝析法、凍結凝析法、機械的せん断力を与えて凝析させる方法などがあげられる。

凝析剤としては、たとえば硝酸、塩酸、硫酸などの酸 ; 硝酸アルミニウム、硫酸アルミニウムなどの金属塩など

が使用でき、これらのうち重合体をクリーンに保つ点からは酸が、操作面の容易さからは金属塩が好ましい。

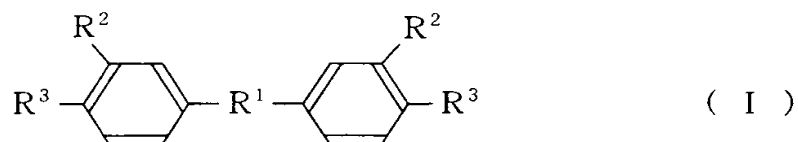
共凝析して得られる凝析物は必要に応じて洗浄し、さらに熱風炉や真空乾燥機などで乾燥することにより、成形用の基礎材料として使用できる。

本発明のエラストマー組成物を基礎材料として使用するときには、得られる成形物に優れた機械的強度、耐摩耗性、透明性、成形加工性などを与えることができる。

本発明のエラストマー組成物に架橋剤、さらに架橋促進剤を配合することにより、架橋性エラストマー組成物とすることができる。

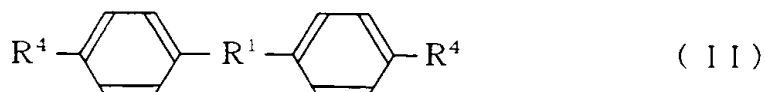
架橋系としてはエラストマーに通常採用されている架橋系が適用でき、たとえばオキサゾール架橋系、イミダゾール架橋系、チアゾール架橋系、トリアジン架橋系、パーオキサイド架橋系、ポリオール架橋系、ポリアミン架橋系などがあげられる。また、放射線や電子線、紫外線などによる架橋も可能である。

オキサゾール架橋系、イミダゾール架橋系、チアゾール架橋系に使用する架橋剤としては、たとえば式(I)：



(式中、 R^1 は $-SO_2-$ 、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、炭素数1～6のアルキレン基、炭素数1～10のパーフルオロアルキレン基または結合手であり、 R^2 および R^3 は一方が $-NH_2$ であり他方が $-NH_2$ 、 $-OH$ または $-SH$ である)で示されるビスアミノ(チオ)フェノール系架橋剤

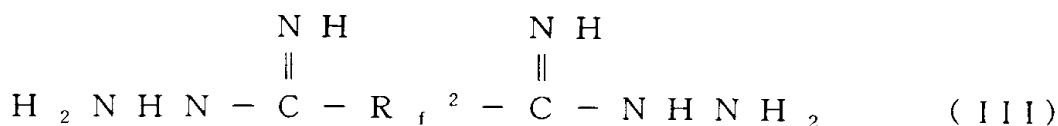
あるいはテトラアミン系架橋剤、式 (II) :



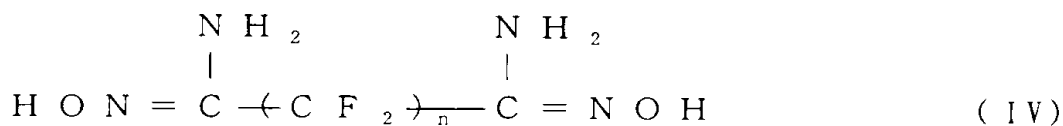
(式中、 R^1 は前記と同じ、 R^4 は $-\text{C} \begin{array}{l} \nearrow \text{NH} \\ \searrow \text{NHNH}_3 \end{array}$

または $-\text{C} \begin{array}{l} \nearrow \text{NOH} \\ \searrow \text{NH}_2 \end{array}$) で示されるビスアミドラゾン系

架橋剤、式 (III) または (IV) :



(式中、 R_f^2 は炭素数 1 ~ 10 のパーフルオロアルキレン基) 、



(式中、 n は 1 ~ 10 の整数) で示されるビスアミドキシム系架橋剤などがあげられる。

また、必要に応じて架橋促進剤を併用してもよい。

配合量は、エラストマー 100 重量部に対して、架橋剤が 0.5 ~ 10 重量部、好ましくは 1 ~ 5 重量部であり、架橋促進剤が 0.1 ~ 10 重量部、好ましくは 0.2 ~ 5 重量部である。

パーオキシサイド架橋系で使用する架橋剤としては、たとえば 1,1-ビス(4-ブチルパーオキシ)-3,5,5-トリメチルシクロヘキサン、2,5-ジメチルヘキ

サン-2, 5-ジヒドロパーオキサイド、ジ-*t*-ブチルパーオキサイド、*t*-ブチルクミルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、 α , α -ビス(*t*-ブチルパーオキシ)-*p*-ジイソプロピルベンゼン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)-ヘキシ-3、ベンゾイルパーオキサイド、*t*-ブチルパーオキシベンゼン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルパーオキシマレイン酸、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネートなどを例示できる。

パーオキサイド架橋系の場合、架橋促進剤を使用することが望ましい。架橋促進剤としては、たとえばトリアリルシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート、トリアリルホルマール、トリアリルトリメリテート、N, N'-*m*-フェニレンビスマレイミド、ジプロパンギルテレフタレート、ジアリルフタレート、テトラアリルテレフタレートアミド、トリアリルホスフェートなどがあげられる。

配合量は、エラストマー100重量部に対して、架橋剤が0.05～10重量部、好ましくは1.0～5重量部であり、架橋促進剤が0.1～10重量部、好ましくは0.5～5重量部である。

パーオキサイド架橋系のように、架橋のために無機充填剤などを用いる必要がなく、架橋によって発色せず、いわゆる純ゴム配合で加硫物が透明性を示す場合には、透明なエラストマー成形品を提供することができる。

本発明で得られる透明な架橋エラストマー成形品は、

ヘイズ値が50%以下、好ましくは40%以下、特に30%以下の透明性を有している。

ポリオール架橋系で使用する架橋剤としては、通常使用されるポリヒドロキシ芳香族化合物が使用でき、たとえば2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(いわゆるビスフェノールA)、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)パーフルオロプロパン(いわゆるビスフェノールAF)、レゾルシン、1,3,5-トリヒドロキシベンゼン、1,7-ジヒドロキシナフタレン、2,7-ジヒドロキシナフタレン、1,6-ジヒドロキシナフタレン、4,4'-ジヒドロキシジフェニル、4,4'-ジヒドロキシスチルベン、2,6-ジヒドロキシアントラセン、ヒドロキノン、カテコール、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン(いわゆるビスフェノールB)、4,4'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)吉草酸、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)テトラフルオロクロロプロパン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルケトン、トリ(4-ヒドロキシフェニル)メタン、3,3',5,5'-テトラクロロビスフェノールA、3,3',5,5'-テトラブromoビスフェノールA、またはこれらのアルカリ金属塩もしくはアルカリ土類金属塩などがあげられる。

ポリオール架橋系においても架橋促進剤を併用することが好ましい。架橋促進剤としては、アンモニウム化合物、ホスホニウム化合物、オキソニウム化合物、スルホニウム化合物などがあげられ、特に4級アンモニウム塩、4級ホスホニウム塩が好ましい。

配合量は、エラストマー 100 重量部に対して架橋剤が 0.5 ～ 5 重量部であり、架橋促進剤が架橋剤 100 重量部に対し 5 ～ 400 重量部、好ましくは 10 ～ 100 重量部である。

またポリアミン架橋系で使用する架橋剤としては、ポリアミン化合物があげられる。ポリアミン化合物としては、分子中に 2 個以上の塩基性窒素を結合する一級アミンまたは二級アミンであり、多くの場合はこれらを塩の形にして反応性をマイルドになるように調整したものを使用する。具体例としては、たとえばエチレンジアミンカーバメート、ヘキサメチレンジアミンカーバメート、4, 4'-ジアミノシクロヘキシルメタンカーバメートなどのアルキレンジアミン類などが比較的よく使用される。また、N, N'-ジシンナミリデン-1, 6-ヘキサメチレンジアミンなどのシッフ塩も使用できる。そのほか、塩基性の乏しいポリアミン芳香族化合物の他の塩基性化合物と併用することにより好ましく使用できる。他の塩基性化合物としては、たとえばジフェニルグアニジン、ジ-オトリグアニジン、ジフェニルチオウレア、2-メルカプトイミダゾリンなどのほか、合成ゴムの架橋促進剤として使用されている分子内に $-NH_2$ および / または $-NH-$ を有する化合物、または 2 価の金属水酸化物などがあげられる。

配合量は、エラストマー 100 重量部に対して、架橋剤が 0.1 ～ 10 重量部、好ましくは 0.5 ～ 5 重量部である。

他の添加剤としては、充填剤（前記フッ素樹脂を除く）、顔料などがあげられる。

充填剤としては、たとえばカーボンプラック（特に黒鉛化カーボンプラック、酸化ケイ素、酸化チタン、アルミナなどの無機充填剤；ポリイミドなどの有機充填剤などがあげられる。配合量はエラストマー 100 重量部に対し 100 重量部以下、好ましくは 1～50 重量部である。

前記架橋剤、架橋促進剤および充填剤などの添加剤は、可能であれば前記共凝析時に添加してもよいが、エラストマーとフッ素樹脂微粒子との組成物を製造したのち混合してもよい。混合方法は従来公知のロールによる混練法などでよい。

かくして得られるフッ素樹脂微粒子が微分散している架橋性エラストマー組成物を混練、架橋して架橋成形物を製造することができる。混練方法としては通常の方法、たとえばロール練り、ニーダー練りなどが採用でき、成形方法も通常の圧縮成形法、射出成形法、押出成形法、トランスファー成形法といった成形法が採用できる。成形条件は従来の条件と同じでよい。

得られる架橋成形物は、充填剤が含まれていない場合は、マトリックスのエラストマーの透明性を維持している。若干透明性が低下することもあるが、それでもエラストマー単独の場合の 20% 以上の可視光線透過率を保っている。

充填剤の有無に拘わらず、本発明の架橋成形物は機械的強度、後加工性、耐プラズマ性、ガスバリアー性に優れている。また、微分散しているフッ素樹脂微粒子はマトリックスのエラストマーから脱落しにくいため、たとえば半導体製造装置の封止材として使用してもパーティ

クルを発生する恐れが少ない。

本発明のエラストマー組成物はその優れた特性を利用してつぎの表 1、2 および 3 に示す成形品として好適である。

表 1

業界	分野	最終製品	最終品	部品
電気	半導体関連	半導体製造装置 液晶パネル製造装置 プラズマパネル製造装置	CVD装置 ドライエッチング装置 ウェットエッチング装置 酸化拡散装置 スパッタリング装置 アッシング装置 洗浄装置 イオン注入装置	O(角)リング、パッキン、 シール材、チューブ、ロー ル、コーティング、ライ ニング、ガスケット、 ダイアフラム、ホース
輸送機	自動車	自動車	エンジン並びに周辺装置	ガスケット、シャフトシー ル、バルブステムシール、 シール材、ホース
			A T装置	ホース、シール材
			燃料系統並びに周辺装置	O(角)リング、チューブ、 パッキン、バルブ芯材、 ホース、シール材、ダイ アフラム
	航空機	航空機	燃料系統	ダイアフラム、O(角) リング、バルブ、チュー ブ、パッキン、ホース、 シール材
	ロケット	ロケット	燃料系統	同 上
化学	船舶	船舶	燃料系統	同 上
	化学品	プラント	医薬、農薬、塗料、樹脂、 等化学品製造工程	ライニング、バルブ、パッ キン、ロール、ホース、 ダイアフラム、O(角) リング、チューブ、シー ル材
			(石油)	
機械	薬品	医薬品	薬栓	薬栓
	写真	現像機	フィルム現像機	ロール
			X線フィルム現像機	ロール
	印刷	印刷機械	印刷ロール	ロール
	塗装	塗装設備	塗装ロール	ロール
食品	分析・理化学機			チューブ
	プラント		食品製造工程	ライニング、バルブ、パッ キン、ロール、ホース、 ダイアフラム、O(角) リング、チューブ、シー ル材
金属	鉄鋼	鉄板加工設備	鉄板加工ロール	ロール

表 2

業界	基本ニーズ
電気	耐プラズマ性、耐酸性、耐アルカリ性、耐アミン性、耐オゾン性、耐ガス性、耐薬品性、クリーン性、耐熱性
輸送機	耐熱性、耐アミン性
	耐熱性、耐アミン性
	耐燃料性、燃料透過性、耐熱性
	耐燃料性、燃料透過性、耐熱性
	耐燃料性、燃料透過性、耐熱性
	耐燃料性、燃料透過性、耐熱性
化学	耐薬品性、耐溶剤性、耐熱性
	耐薬品性、耐溶剤性、耐熱性
	クリーン性
機械	耐薬品性
	耐薬品性
	耐溶剤性
	耐溶剤性
食品	耐薬品性、耐溶剤性、耐熱性
金属	耐熱性、耐酸性

表 3

業界	具体名称
電気	該当製造装置のゲートバルブのＯリング、シール材
	該当製造装置のクォーツウィンドウのＯリング、シール材
	該当製造装置のチャンバーのＯリング、シール材
	該当製造装置のゲートのＯリング、シール材
	該当製造装置のベルジャーのＯリング、シール材
	該当製造装置のカップリングのＯリング、シール材
	該当製造装置のポンプのＯリング、シール材
	該当製造装置の半導体用ガス制御装置のＯリング、シール材
	レジスト現像液、剥離液用のＯリング、シール材
	ウェハー洗浄液用のＯリング、シール材
	該当製造装置のポンプのダイヤフラム
	レジスト現像液、剥離液用のホース
	ウェハー洗浄液用のホース、チューブ
	ウェハー搬送用のロール
	レジスト現像液槽、剥離液槽のライニング、コーティング
	ウェハー洗浄液槽のライニング、コーティング
	ウェットエッチング槽のライニング、コーティング
輸送機	エンジンヘッドガスケット
	メタルガスケット
	クランクシャフトシール
	カムシャフトシール
	バルブステムシール
	マニホールドパッキン
	オイルホース
	ＡＴＦホース
	インジェクターＯリング
	インジェクターパッキン
化学	燃料ポンプＯリング、ダイヤフラム
	燃料ホース
機械	現像ロール
	現像ロール
	グラビアロール
	ガイドロール
	磁気テープ製造塗工ラインのグラビアロール
	磁気テープ製造塗工ラインのガイドロール
	各種コーティングロール
食品	
金属	

特に具体的には次のような半導体製造装置に組み込んで用いることができる。

(1) エッチング装置

ドライエッチング装置

プラズマエッチング装置

反応性イオンエッチング装置

反応性イオンビームエッチング装置

スパッタエッチング装置

イオンビームエッチング装置

ウェットエッチング装置

アッシング装置

(2) 洗浄装置

乾式エッチング洗浄装置

UV / O₃ 洗浄装置

イオンビーム洗浄装置

レーザービーム洗浄装置

プラズマ洗浄装置

ガスエッチング洗浄装置

抽出洗浄装置

ソックスレー抽出洗浄装置

高温高圧抽出洗浄装置

マイクロウェーブ抽出洗浄装置

超臨界抽出洗浄装置

(3) 露光装置

ステッパー

コータ・デベロッパー

(4) 研磨装置

CMP装置

(5) 成膜装置

C V D 装置

スパッタリング装置

(6) 拡散・イオン注入装置

酸化拡散装置

イオン注入装置

つぎに本発明を合成例および実施例をあげて説明するが、本発明はかかる合成例および実施例のみに限定されるものではない。

合成例 1 (含フッ素エラストマー粒子のエマルションの製造)

着火源をもたない内容積 47 リットルのステンレススチール製オートクレーブに、純水 30 リットルおよび乳化剤として $C_7F_{15}COONH_4$ を 300 g、pH 調整剤としてリン酸水素二ナトリウム・12 水塩 2.7 g を仕込み、系内を窒素ガスで十分に置換し脱気したのち、200 rpm で攪拌しながら、50℃ に昇温し、テトラフルオロエチレン (TFE) とパーフルオロ (メチルビニルエーテル) (PMVE) の混合ガス (TFE / PMVE = 24 / 76 モル比) を、内圧が 1.18 MPa になるように仕込んだ。ついで、過硫酸アンモニウム (APS) の 55.8 mg / ml 濃度の水溶液 100 ml を窒素圧で圧入して反応を開始した。

重合の進行により内圧が、1.08 MPa まで降下した時点で、ジヨウ素化合物 $[I(CF_2)_4I]$ 62.3 g を窒素圧にて圧入した。ついで圧力が 1.18 MPa になるように、TFE 60 g を自圧にて、PMVE 60

g をプランジャーポンプにて圧入した。以後、反応の進行にともない同様に T F E、P M V E を圧入し、1. 0 8 ~ 1. 1 8 M P a の間で昇圧、降圧を繰り返すと共に、T F E と P M V E の合計量が 6. 5 k g、7. 8 k g、9. 1 k g および 1 0. 4 k g となった時点でそれぞれヨウ素化合物である $C F_2 = C F O C F_2$ 、 $C F_2 C H_2 I$ を 2 5. 6 g 窒素圧で圧入した。その後、重合開始から 1 2 時間経過ごとに A P S の 5 2. 5 m g / m l 濃度の水溶液 2 0 m l を窒素圧で圧入した。

重合反応の開始から 3 3 時間後、T F E および P M V E の合計仕込み量が 1 3 k g になった時点で、オートクレーブを冷却し、未反応モノマーを放出して固形分濃度 2 7. 5 重量% の含フッ素エラストマー粒子(平均粒径: 7 0 n m) のエマルション (A - 1) を得た。

このエマルションの一部を取り出し、硝酸を加えて凝析し、析出物を洗浄、乾燥してエラストマー粒子を得た。このエラストマーのムーニー粘度 $M L_{1+10}$ (1 0 0 °C) は 4 2 であり、 ^{19}F - N M R 分析での組成比は T F E / P M V E = 6 2 / 3 8 (モル%) であり、D S C で測定したガラス転移温度 T_g (中央値) は - 3 °C であった。

合成例 2 (フッ素樹脂微粒子のエマルションの製造)

着火源をもたない内容積 6 リットルのステンレススチール製オートクレーブに、純水 3 リットルおよび乳化剤として $C_3 F_7 O C F (C F_3) C F_2 O C F (C F_3) C O O N H_4$ を 3 0 g、p H 調整剤としてリン酸水素二ナトリウム・1 2 水塩 0. 2 7 g を仕込み、系内を窒素ガスで十分に置換し脱気したのち、6 0 0 r p m で攪拌しながら、8 0 °C に昇温し、テトラフルオロエチレン (T

F E) とパーフルオロ (メチルビニルエーテル) (P M V E) の混合ガス (T F E / P M V E = 8 8 / 1 2 モル比) を、内圧が 0 . 2 0 M P a になるように仕込んだ。ついで、過硫酸アンモニウム (A P S) の 2 . 5 m g / m l 濃度の水溶液 4 m l を窒素圧で圧入して反応を開始した。

重合の進行により内圧が、0 . 1 5 M P a まで降下した時点で、T F E / P M V E の混合ガス (T F E / P M V E = 9 5 / 5 モル比) を内圧が 0 . 2 0 M P a になるように窒素ガスで圧入した。以後、反応の進行にともない同様に T F E / P M V E 混合ガス (9 5 / 5 モル比) を圧入し、0 . 1 5 ~ 0 . 2 0 M P a の間で昇圧、降圧を繰り返した。

重合反応の開始から 4 . 5 時間後、T F E および P M V E の合計仕込み量が 3 3 1 g になった時点で、オートクレーブを冷却し、未反応モノマーを放出して固形分濃度 9 . 7 重量% のフッ素樹脂微粒子 (平均粒径: 4 4 n m) のエマルション (B - 1) を得た。平均粒径はエマルション 1 2 0 m g をジメチルスルホキシド 4 . 4 g と混合し、大塚電子 (株) 製の L P A - 3 0 0 0 、 3 1 0 0 で測定した。

このエマルションの一部を取り出し、硝酸を加えて凝析し、析出物を洗浄、乾燥して白色のフッ素樹脂微粉末を得た。このフッ素樹脂のメルトフローレート M F R は 3 7 2 °C 5 分間保持の条件で測定不能であり、¹⁹F - N M R 分析での組成比は T F E / P M V E = 9 4 . 5 / 5 . 5 (モル%) であり、D S C で測定した融点は 2 9 0 °C であった。

合成例 3 (フッ素樹脂微粒子のエマルションの製造)

着火源をもたない内容積 6 リットルのステンレススチール製オートクレーブに、純水 3 リットルおよび乳化剤として $C_3F_7OCF(CF_3)CF_2OCF(CF_3)COONH_4$ を 30 g、pH 調整剤としてリン酸水素二ナトリウム・12 水塩 0.27 g を仕込み、系内を窒素ガスで十分に置換し脱気したのち、600 rpm で攪拌しながら、80℃ に昇温し、テトラフルオロエチレン (TFE) とパーフルオロ (メチルビニルエーテル) (PMVE) の混合ガス (TFE / PMVE = 88 / 12 モル比) を、内圧が 0.20 MPa になるように仕込んだ。ついで、過硫酸アンモニウム (APS) の 2.5 mg / ml 濃度の水溶液 4 ml を窒素圧で圧入して反応を開始した。

重合の進行により内圧が、0.15 MPa まで降下した時点で、ジヨウ素化合物 $[I(CF_2)_4I]$ 2.92 g を窒素圧にて圧入した。ついで TFE / PMVE の混合ガス (TFE / PMVE = 95 / 5 モル比) を内圧が 0.20 MPa になるように窒素ガスで圧入した。以後、反応の進行にともない同様に TFE / PMVE 混合ガス (95 / 5 モル比) を圧入し、0.15 ~ 0.20 MPa の間で昇圧、降圧を繰り返した。

重合反応の開始から 9.9 時間後、TFE および PMVE の合計仕込み量が 327 g になった時点で、オートクレーブを冷却し、未反応モノマーを放出して固形分濃度 9.4 重量% のフッ素樹脂微粒子 (平均粒径: 44 nm) のエマルション (B-2) を得た。

このエマルションの一部を取り出し、硝酸を加えて凝

析し、析出物を洗浄、乾燥して白色のフッ素樹脂微粉末を得た。このフッ素樹脂のメルトフローレートMFRは 372°C 5分間保持の条件で $21.1\text{ g} / 10\text{分}$ であり、 ^{19}F -NMR分析での組成比はTFE / PMVE = $94.9 / 5.1$ (モル%)であり、DSCで測定した融点は 280.7°C であった。

合成例4 (含フッ素エラストマー粒子のエマルションの製造)

着火源をもたない内容積3リットルのステンレススチール製オートクレーブに、純水1リットルおよび乳化剤として $\text{C}_3\text{F}_7\text{OCF}(\text{CF}_3)\text{CF}_2\text{OCF}(\text{CF}_3)\text{COONH}_4$ を 10 g 、pH調整剤としてリン酸水素二ナトリウム・12水塩 0.09 g を仕込み、系内を窒素ガスで十分に置換し脱気したのち、 600 rpm で攪拌しながら、 53°C に昇温し、テトラフルオロエチレン(TFE)とパーフルオロ(メチルビニルエーテル)(PMVE)の混合ガス(TFE / PMVE = $25 / 75$ モル比)を、内圧が 0.78 MPa になるように仕込んだ。ついで、過硫酸アンモニウム(APS)の $264\text{ mg} / \text{ml}$ 濃度の水溶液 20 ml を窒素圧で圧入して反応を開始した。

重合の進行により内圧が、 0.69 MPa まで降下した時点で、 $\text{CF}_2 = \text{CFOCF}_2\text{CF}(\text{CF}_3)\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{CN}(\text{CNVE})$ を 2.2 g 窒素圧にて圧入した。ついで圧力が 0.78 MPa となるように、TFEを 4.7 g およびPMVEを 5.3 g それぞれ自圧にて圧入した。以後、反応の進行にともない同様にTFEおよびPMVEを圧入し、 $0.69 \sim 0.78\text{ MPa}$ の間で昇圧、

降圧を繰り返すとともに、TFEとPMVEの合計量が70gになった時点でCNVEを2.2g窒素圧にて圧入した。

重合反応の開始から6時間後、TFEおよびPMVEの合計仕込み量が130gになった時点で、オートクレーブを冷却し、未反応モノマーを放出して固形分濃度11.3重量%の含フッ素エラストマー粒子のエマルション(A-2)1160gを得た。

このエマルションのうちの100gを水300gで希釈し、3.5重量%塩酸水溶液280g中に攪拌しながらゆっくりと添加した。添加後、さらに5分間攪拌し、得られた凝析物をろ別した。得られたエラストマー粒子をさらに200gのHCFCl-141bにより洗浄し、ろ別した。HCFCl-141bでの洗浄およびろ別を4回繰返したのち60℃で72時間真空乾燥して、11.2gの含フッ素エラストマーを得た。

この含フッ素エラストマーについて ^{19}F -NMR分析により組成比を求めたところ、TFE/PMVE/CNVE = 60.4/38.9/0.7(モル%)であった。

実施例 1

合成例1で得られた含フッ素エラストマー粒子のエマルション(A-1)1236gと合成例2で得られたフッ素樹脂微粒子のエマルション(B-1)619gを混合し(固形分比:含フッ素エラストマー/フッ素樹脂 = 85/15重量比)、攪拌している9%硝酸水溶液411g中に10分間かけて滴下して共凝析を行なった。得られた共凝析物を水洗し、乾燥して含フッ素エラストマーにフッ素樹脂微粒子が微分散したエラストマー組成物を得

た。

このエラストマー組成物を D T A で測定したところ 272.6℃ にフッ素樹脂に基づくと考えられる吸収が認められた。また、この組成物は透明（ヘイズ値：12%）であった。

（ヘイズ値の測定）

供試エラストマー組成物をその溶融温度（60～150℃）で、必要に応じて圧力をかけながら厚さ 0.7 mm の試験サンプルを作製する。この試験サンプルを直流ヘイズメータ（東洋精機（株）製。J I S K 7 1 0 5 および A S T M D 1 0 0 3 に対応した測定装置）により測定する。

なお、後述する架橋成形品のヘイズ値はエラストマー組成物を架橋成形して作製した厚さ 2 mm のシートを供試サンプルとする。

このエラストマー組成物を透過型電子顕微鏡（T E M）によりレプリカ法で 20000 倍の倍率で撮影した写真を図 1 に示す。図 1 において、粒状の凸部がフッ素樹脂微粒子であり、多数のフッ素樹脂微粒子（平均粒径が約 40 nm）が均一に微細に分散していることがわかる。なお、この微細分散状態は、後述する比較例 3 で得られた組成物の T E M 写真（図 2）と比較すればその違いが明確である。

実施例 2

フッ素樹脂微粒子のエマルション（B-1）の混合量を 412 g に変更したほかは実施例 1 と同様にして共凝析を行ない、エラストマー組成物を得た（固形分比：含フッ素エラストマー／フッ素樹脂＝90／10、重量比）。

この組成物は透明（ヘイズ値：12%）であった。

実施例 3

フッ素樹脂微粒子のエマルション（B-1）の混合量を206gに変更したほかは実施例1と同様にして共凝析を行ない、エラストマー組成物を得た（固形分比：含フッ素エラストマー／フッ素樹脂＝95／5、重量比）。この組成物は透明（ヘイズ値：11%）であった。

実施例 4

フッ素樹脂微粒子のエマルション（B-1）に代えて合成例3で得られたフッ素樹脂微粒子のエマルション（B-2）を638g混合したほかは実施例1と同様にして共凝析を行ない、エラストマー組成物を得た（固形分比：含フッ素エラストマー／フッ素樹脂＝85／15、重量比）。この組成物は透明（ヘイズ値：12%）であった。

実施例 5

実施例1で製造したエラストマー組成物100重量部に架橋剤として2,5-ジメチル-2,5-ジ（t-ブチルパーオキシ）ヘキサン1重量部および架橋促進剤としてトリアリルイソシアヌレート1重量部を混合し、オープンロールにより混練りして架橋性エラストマー組成物を得た。

この架橋性エラストマー組成物の加硫性を後述の方法で調べた。結果を表4に示す。

さらに架橋性エラストマー組成物を150℃で30分間プレス架橋したのち180℃で4時間オープン架橋を行ない、架橋物を得た。この架橋物について常態物性を測定した。また、同様の架橋条件でO-リング（P-24）を製造し圧縮永久歪みを測定した。さらにエラストマー

架橋物シート（厚さ 2 mm）のヘイズ値を測定した。結果を表 4 に示す。

（加硫性）

各加硫用組成物について J S R 型キュラストメーター II 型により、表 4 に記載の温度にて加硫曲線を求め、最低トルク、最高トルク、誘導時間および最適加硫時間を求める。

（常態物性）

J I S K 6 3 0 1 に準じて常態（25℃）での 100% モジュラス、引張強度、引張伸びおよび硬度（J I S A 硬度）を測定する。

（圧縮永久歪み）

J I S K 6 3 0 1 に準じて 200℃、70 時間後の圧縮永久歪みを測定する。

実施例 6 ～ 10

表 4 に示す組成の架橋性エラストマー組成物を実施例 5 と同様にして製造して加硫性を調べると共に、実施例 5 と同様の架橋条件で架橋物を製造し、常態物性および圧縮永久歪み、ヘイズ値を調べた。結果を表 4 に示す。

なお、実施例 6 ～ 8 で混合した充填剤は酸化ケイ素（日本アエロジル（株）製のアエロジル 300）である。

比較例 1 ～ 2

フッ素樹脂微粉末を混合しなかったほかは実施例 5 と同様にして架橋性エラストマー組成物を製造した（ヘイズ値：10%）。この組成物の加硫性を調べると共に、実施例 5 と同様の架橋条件で架橋物を製造し、常態物性および圧縮永久歪みを調べた。結果を表 4 に示す。

比較例 3

合成例 1 で得られた含フッ素エラストマー粒子のエマルジョン（A-1）に硝酸を加えて凝析し、析出物を洗浄、乾燥してエラストマー粒子を得た。一方、合成例 2 で得られたフッ素樹脂微粒子のエマルジョン（B-1）に硝酸を加えて凝析し、析出物を洗浄、乾燥して白色のフッ素樹脂粉末を得た。前記エラストマー粒子 85 重量部に前記フッ素樹脂粉末 15 重量部をドライブレンドし、白色不透明（ヘイズ値：82%）な組成物を得た。この組成物の TEM 写真（20000 倍）を図 2 に示す。図 2 から明らかなように、エラストマー部分（図 2 の両側の平坦な部分）とフッ素樹脂微粒子が凝集している部分（図 2 の中央部分の表面が粗くなった部分）とが明確に分かれている。

この組成物を用いたほかは実施例 5 と同様にして架橋性エラストマー組成物を製造し、加硫性を調べると共に、実施例 5 と同様の架橋条件で架橋物を製造し、常態物性、圧縮永久歪みおよびヘイズ値を調べた。結果を表 4 に示す。

表 4

	実施例						比較例		
	5	6	7	8	9	10	1	2	3
エラストマー組成物									
実施例1	100	100				100			
実施例2			100						
実施例3				100					
実施例4					100				
合成例1(エラストマー)							100	100	85
合成例2(フッ素樹脂粉末)									15
架橋剤	1	1	1	1	1	1	1	1	1
架橋促進剤	1	3	3	3	1	0.5	1	3	1
SiO ₂	—	3	3	3	—	—	—	3	—
加硫性(160℃)									
最低トルク(kg)	0.18	0.40	0.27	0.15	0.10	0.17	0.03	0.10	0.06
最高トルク(kg)	4.51	7.70	7.20	6.15	5.02	4.12	3.98	6.00	4.71
誘導時間(分)	0.7	0.5	0.5	0.5	0.6	0.7	0.5	0.6	0.5
最適加硫時間(分)	1.4	1.4	1.2	1.4	1.5	1.4	1.1	1.1	0.9
常態物性									
100%モジュラス(MPa)	4.5	13.8	7.4	6.4	3.7	4.5	2.1	4.9	4.7
引張強度(MPa)	20.8	24.9	22.8	16.3	18.3	19.7	12.3	16.5	8.6
伸び(%)	202	155	208	152	197	208	186	180	168
硬度(JIS A)	71	80	75	71	71	70	60	68	71
圧縮永久歪み(%)	33	27	22	12	34	36	18	13	37
ヘイズ値(%)	41	—	—	—	43	20	—	—	82

実施例 1 1

合成例 4 で得られた含フッ素エラストマー粒子 (A-2) 300g と合成例 2 で得られたフッ素樹脂微粒子 (B-1) 619g を含フッ素エラストマー／フッ素樹脂 = 85／15 (重量比) で混合し、攪拌している 9% 硝酸水溶液 981g 中に 20 分間かけて滴下して共凝析を行なった。得られた共凝析物を水洗し、乾燥して含フッ素エラストマーにフッ素樹脂微粒子が微分散した透明なエ

ラストマー組成物（ヘイズ値：18％）を得た。

実施例 1 2

実施例 1 1 で製造したエラストマー組成物 1 0 0 重量部に対して、架橋剤として 2, 2-ビス-[(3-アミノ-4-フェニルアミノ)フェニル]ヘキサフルオロプロパン（ジャーナル・オブ・ポリマー・サイエンス、ポリマー・ケミストリー編、Vol. 20, 2381~2393（1982）記載の方法で合成した）1.45 重量部をオープンロールにより混練して架橋性エラストマー組成物を調製した。この架橋性エラストマー組成物の加硫性を前記の方法で調べたところ、つぎのとおりであった。

加硫性（170℃）

最低トルク：0.45 kg

最大トルク：2.90 kg

誘導時間：4.4 分

最適加硫時間：8.7 分

さらにこの架橋性エラストマー組成物を 170℃で 15 分間プレス架橋したのち 204℃で 18 時間、ついで 288℃で 18 時間のオープン架橋を行なって架橋物を製造した。得られた架橋物についても前記と同様に常態物性を測定し、また前記と同様の条件でオーリング（P-24）を作製し、その圧縮永久歪みを測定した。結果はつぎのとおりである。

常態物性

100%モジュラス：2.9 MPa

引張強度：19.4 MPa

伸び：252%

硬度（J I S A）：74

圧縮永久歪み（200℃、70時間、25%圧縮）

圧縮永久歪み：15%

産業上の利用可能性

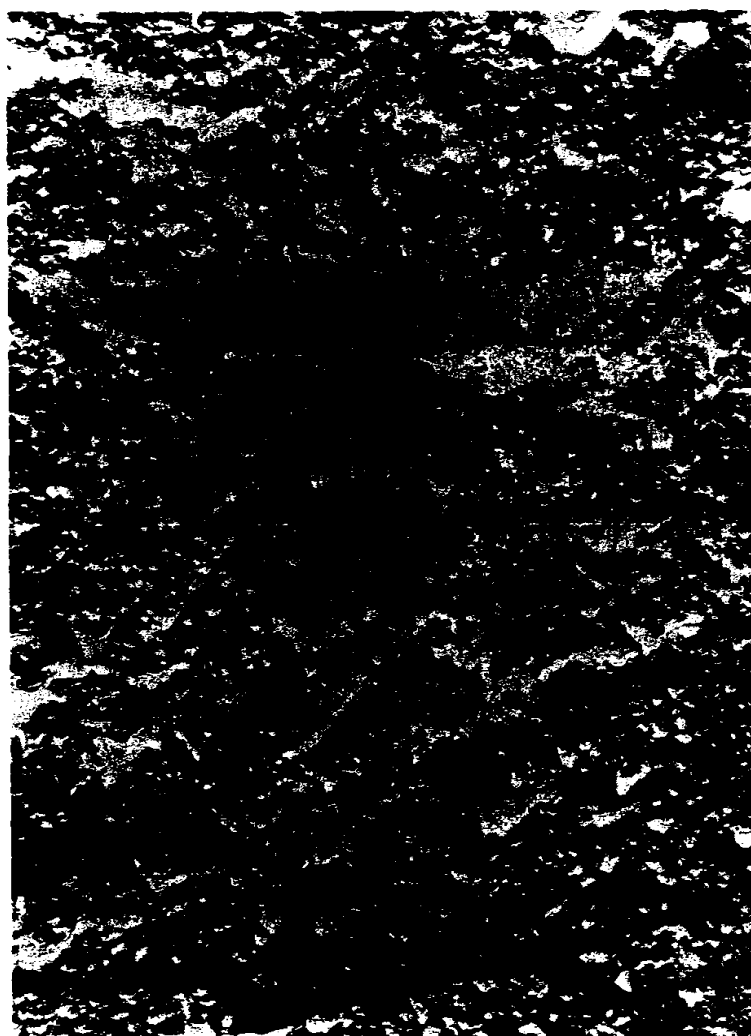
本発明によれば、機械的強度、耐摩耗性、透明性などに優れるエラストマー成形品を与え得る組成物を提供することができる。

請求の範囲

1. エラストマーにフッ素樹脂微粒子が微細に分散している透明なエラストマー組成物。
2. エラストマーにフッ素樹脂微粒子が微細に分散している透明なエラストマー組成物にさらに充填剤が含まれている組成物。
3. エラストマーが含フッ素エラストマーである請求の範囲第1項または第2項記載の組成物。
4. 架橋剤を含む請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載の組成物。
5. 透明なエラストマー組成物が、ヘイズ値で50%以下の透明性を有する請求の範囲第1項～第4項のいずれかに記載の組成物。
6. エラストマー粒子のエマルションとフッ素樹脂微粒子のエマルションとを混合したのち共凝析する請求の範囲第1項記載の透明なエラストマー組成物の製造法。
7. フッ素樹脂微粒子のエマルションが、平均粒径が20～150nmのフッ素樹脂微粒子のエマルションである請求の範囲第6項記載の製造法。
8. 請求の範囲第1項～第5項のいずれかに記載の組成物を加硫成形して得られるエラストマー成形品。
9. 透明である請求の範囲第8項記載のエラストマー成形品。
10. ヘイズ値が50%以下である請求の範囲第9項記載のエラストマー成形品。



FIG. 1



1 μm



FIG. 2



1 μ m



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06631

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ C08L27/12, C08K5/00, C08L21/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ C08L27/12, C08K5/00, C08L21/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

DERWENT WPI/L "TRANSPARENT" in abstract

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP, 11-315180, A (Nippon Mektron K.K.), 16 November, 1999 (16.11.99), Claims; Par. Nos. [0026] to [0030], [0038], [0064] (Family: none)	1-10
X Y	JP, 2-261850, A (NIPPON VALQUA INDUSTRIES, LTD.), 24 October, 1990 (24.10.90), Claims; page 3, upper right column, lines 12 to 18 (Family: none)	1-6, 8-10 7
X Y	JP, 6-283831, A (Rogers Corporation), 07 October, 1994 (07.10.94), Claims DE, 4319045, A1 Claims	1-6, 8-10 7
Y	JP, 61-247966, A (Daikin Industries, Ltd.), 05 November, 1986 (05.11.86), Claims; page 2, upper right column, line 3 to lower left column, line 16 (Family: none)	7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
14 December, 2000 (14.12.00)Date of mailing of the international search report
26 December, 2000 (26.12.00)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) IntCl ⁷ C08L27/12、C08K5/00、C08L21/00		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) IntCl ⁷ C08L27/12、C08K5/00、C08L21/00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) DERWENT WPI/Lアブストラクト中の"TRANSPARENT"		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P, X	JP, 11-315180, A (日本メクトロン株式会社) 16. 11月. 1999 (16. 11. 99), 特許請求の範囲、【0026】～【0030】、【0038】、【0064】 (ファミリー無し)	1～10
X Y	JP, 2-261850, A (日本バルカー工業株式会社) 24. 10月. 1990 (24. 10. 90), 特許請求の範囲、第3頁右上欄12行目～18行目 (ファミリー無し)	1～6, 8～10 7
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの</p> <p>「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</p> <p>「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)</p> <p>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献</p> <p>「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「&」同一パテントファミリー文献</p>		
国際調査を完了した日 14. 12. 00	国際調査報告の発送日 26. 12. 00	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 原田 隆興 印 電話番号 03-3581-1101 内線 3495	4 J 9843

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 6-283831, A (ロジヤーズ・コーポレーション) 7. 10月. 1994 (07. 10. 94), 特許請求の範囲、 DE, 4319045, A1 特許請求の範囲	1~6, 8~10 7
Y	JP, 61-247966, A (ダイキン工業株式会社) 5. 11月. 1986 (05. 11. 86), 特許請求の範囲、第2頁右上欄3行目~左下欄16行目 (ファミリー無し)	7